

法政大学学術機関リポジトリ
HOSEI UNIVERSITY REPOSITORY

超流動ヘリウム中Ag原子の超微細構造間隔測定

著者	小林 航
出版者	法政大学大学院理工学研究科
雑誌名	法政大学大学院紀要．理工学・工学研究科編
巻	60
ページ	1-6
発行年	2019-03-31
URL	http://doi.org/10.15002/00022071

超流動ヘリウム中 Ag 原子の 超微細構造間隔測定

MEASUREMENT OF HYPERFINE STRUCTURE SPLITTING OF SILVER ATOMS IN SUPERFLUID HELIUM

小林航

Wataru KOBAYASHI

指導教員 松尾由賀利

法政大学大学院理工学研究科システム理工学専攻修士課程

We have been developing a laser spectroscopy technique called OROCHI to study nuclear structure of low production yield unstable nuclei. In OROCHI, the energetic ion beams generated at an accelerator are stopped in superfluid helium with high efficiency (~100%) and neutralized. Zeeman structure splitting of atoms is measured using laser-radio frequency double resonance method to determine their nuclear spins. We can also derive nuclear electromagnetic moments from the measurement of hyperfine structure splitting using laser-microwave double resonance method. It is also important to develop measurement method for various atomic species without using accelerators. For this purpose we introduce stable isotopes into superfluid helium by laser ablation method. We have so far successfully applied OROCHI to alkali atoms such as Rb and Cs. However, studies of atomic species other than alkalis are limited. In this study, we successfully introduced Ag atoms into superfluid helium using two-step laser sputtering by changing the wavelength of the second laser. As a result, we successfully measured the hyperfine structure splitting of Ag atoms.

Key Words: Laser spectroscopy, Superfluid helium, Laser ablation, hyperfine structure splitting

1. 研究背景

原子核の核構造を反映する核スピン、核モーメントを決定する手法の一つとして、原子核の持つ電磁氣的性質と電子との相互作用に起因する超微細構造間隔及びゼーマン準位間隔を、レーザー光を用いて調べるレーザー核分光法があげられる。我々のグループの手法 OROCHI (Optical Radioisotope atom Observation in Condensed Helium as Ion-catcher)では、加速器施設でイオンビームとして生成される短寿命・低収量な不安定核原子に対し、レーザー核分光法を適用するため、超流動ヘリウムの高密度性を活かし、高速のイオンビームをごく狭い領域内へ停止させる。超流動ヘリウム中に停止した不安定核原子に対して光ポンピング法によりスピン偏極を生成し、レーザー・ラジオ波/マイクロ波二重共鳴法を行うことにより、ゼーマン準位/超微細構造間隔の測定を行う。

超流動ヘリウムは、停止媒体としてだけではなく分光環境としても優れている。超流動ヘリウム中に原子を導入すると周囲のヘリウムとの相互作用によって、原子の励起スペクトルは真空中と比べて短波長側にシフトし線幅が広がることが知られている[1]。この特徴を利用する

ことで、信号となる原子からの蛍光を観測する場合にバックグラウンドノイズとなるレーザー光を波長の違いにより分離できる。また、二重共鳴法を行う上で重要となるスピン偏極を単一のレーザーで効率的に生成することが可能となる。

これまでに、安定同位体である $^{85,87}\text{Rb}$ 、 ^{133}Cs 、 ^{197}Au をレーザーアブレーション法で超流動ヘリウム中に導入し、超流動ヘリウム環境における原子の分光が行われてきた。光ポンピング法を用いたスピン偏極生成では 60-90% という高効率のスピン偏極状態を生成し、ゼーマン準位間隔、超微細構造間隔の測定が可能であることが示されてきた[2-4]。特に、 ^{133}Cs 原子においては超流動ヘリウム中において超微細構造異常を求め得る 6 桁の精度で超微細構造間隔の測定を成功している[5]。

さらには、不安定同位体を含めて加速器施設で生成される $^{84-85,87}\text{Rb}$ のイオンビームを超流動ヘリウム中に打ち込み、ビームの停止、原子からの蛍光観測、ゼーマン準位間隔の測定による核スピンの導出に成功している[6]。

2. 研究目的

上述のように、超流動ヘリウム中における ^{133}Cs 、 $^{85,87}\text{Rb}$ などアルカリ原子の精密測定が進歩している一方で、アルカリ原子以外の原子に対しては ^{197}Au 原子を除いて超微細構造間隔の測定が行われていない。

本研究では、OROCHI を適用可能な原子種の増大に向けて、一電子系原子であり、安定同位体を2つ持つ $^{107,109}\text{Ag}$ 原子の超微細構造間隔の測定、ひいては超微細構造間隔異常の導出を目指す。

3. 原理

3.1 原子供給方法

超流動ヘリウム中に原子を供給するためには、2本のレーザー（アブレーション用、解離用）を用いて、レーザーアブレーションを行う。原子供給の概略図を図1に示す。

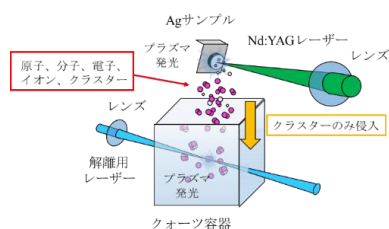


図1 原子供給の概略図

[アブレーション]

出力の大きなレーザーを固体表面に集光すると、破壊や蒸発を引き起こし表面が傷つく。この時、固体表面から原子、イオン、電子、クラスターなどが放出される。放出された原子はレーザーエネルギーを吸収して加熱され、高温・高密度のレーザー誘起プラズマを形成する。これをレーザーアブレーションという。

本研究では、アブレーション用レーザーとして、Nd:YAG (Neodymium-doped Yttrium Aluminum Garnet) レーザー(New Wave Research, Model: Tempest)の第2高調波(波長 532 nm、繰り返し周波数 10 Hz、出力 5 mJ/pulse、パルス幅 <10 ns)を使用して、超流動ヘリウム液面の約 1cm 上方に設置した金属固体サンプル (Ag) のレーザーアブレーションを行う。

[クラスター解離]

レーザーアブレーションによる生成物の中で、超流動ヘリウム中に侵入してくるものの多くは、クラスターである。そのため、超流動ヘリウム中で原子分光を行うためには、クラスターを原子にまで解離する必要がある。これまで、Cs, Rb, Au 原子については、パルス幅が数百フェムト秒、波長約 800nm の超短パルスレーザーがクラスター解離に有効であることが確かめられていた。しかし、Ag 原子に対しては、この手法が機能せず、解離用レーザーの波長を再考する必要がある。

そこで本研究では、解離用レーザーの波長を短波長にすることを重視し、Nd:YAG レーザー (Litron Laser, Model:

nano L 290-20) の第3高調波(波長 355 nm、繰り返し周波数 20 Hz、出力 ≥ 8 mJ/pulse、パルス幅 <5 ns)を使用する。

3.2 測定手法

OROCHI ではゼーマン準位間隔、超微細構造間隔を測定する手法としてレーザー・ラジオ波/マイクロ波二重共鳴法を用いる。この手法では、まず初めに原子の占拠数のある1つのエネルギー準位に集中させ、原子偏極を生成する必要がある(光ポンピング法)。その後、他のゼーマン副準位や超微細準位へ遷移させ、遷移シグナルを得る(二重共鳴法)。

[光ポンピング法]

光ポンピング法は、円偏光の光源を使い原子偏極を生成する手法である[7]。図2に、光ポンピングの原理についての概念図を示す。

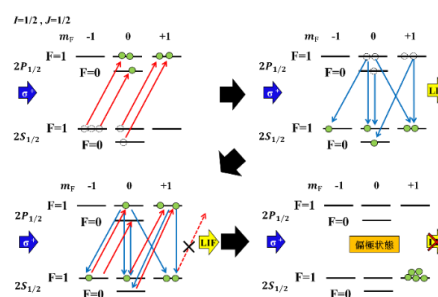


図2 光ポンピング法原理の概念図

まず、円偏光レーザー(ポンピングレーザー)を照射し、 $S_{1/2}$ から $P_{1/2}$ 準位へ D1 励起(赤矢印)を行う。原子が円偏光の光を吸収する際、その円偏光の持つ角運動量も吸収する。従って、 σ^+ の右回り円偏光を用いた場合、基底準位から磁気量子数が $\Delta m_F = +1$ である上準位へと遷移する。励起した原子は自然放出寿命を迎えると、レーザー誘起蛍光 (laser-induced fluorescence: LIF) を放出して下準位へと遷移する。この時、 $\Delta m_F = \pm 1$ or 0 の選択則に従って基底準位への脱励起(青矢印)が起きる。ここで、 $S_{1/2}$ の磁気量子数最大の準位 ($m_F = +1$) に遷移した原子は、 $P_{1/2}$ により大きい磁気量子数を持つ準位がないため σ^+ の円偏光レーザーを吸収した励起ができなくなる。これにより、原子は励起・脱励起のサイクルを繰り返すうちに、この $S_{1/2}$ 、 $m_F = +1$ の準位に集まり、偏極が生成される。完全に偏極した原子は励起状態に遷移できなくなり、LIF は観測されなくなる。

同様に σ^- の左回り円偏光レーザーを用いると、磁気量子数の変化が $\Delta m_F = -1$ となる。これに従い、基底状態の磁気量子数が最小の準位 ($S_{1/2}$ 、 $m_F = -1$) に偏極する。

[二重共鳴法]

二重共鳴法原理の概念図を Fig.2.4 に示す。原子の超微

細構造間隔はマイクロ波周波数領域(\sim GHz)、弱い磁場中でのゼーマン準位間隔はラジオ波周波数領域(\sim MHz)で共鳴する。偏極が生成された原子に対して、円偏光のレーザーを照射した状態で、マイクロ波を照射し周波数を掃引すると、超微細構造間隔に相当する周波数で共鳴が起こり基底状態の他の超微細構造準位に遷移する。ラジオ波を掃引した場合は、ゼーマン準位間隔に相当する周波数で共鳴し、同一超微細構造準位内の隣接したゼーマン準位に遷移する。偏極崩壊時に、原子は再びポンピングレーザーを吸収できるようになり、一時的に LIF 強度が増大する。その際の共鳴周波数を測定することで、超微細構造間隔やゼーマン準位間隔を知ることができる。

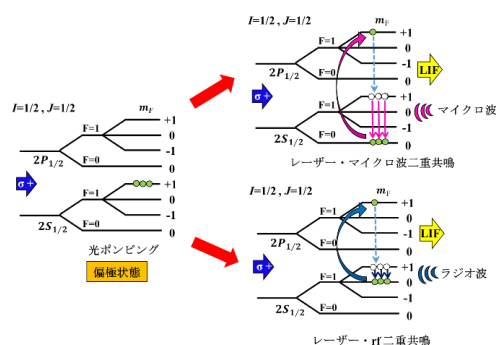


図4 二重共鳴法原理の概念図

4. 実験方法、結果

4.1 レーザーアブレーションによるプラズマ発光観測

超流動ヘリウム内に原子を供給するために、超流動ヘリウム液面上方に設置された金属固体サンプルにアブレーション用レーザーを照射する。この時に発生するプラズマ発光を観測することで、レーザーアブレーションに成功しているか確認することが可能である。図5に実験セットアップを示す。

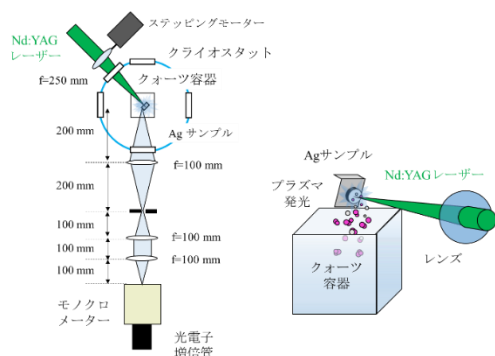


図5 アブレーションによるプラズマ発光観測実験概略図

図5のようにセットアップを行う。超流動ヘリウムの液面から約1 cm 上方に設置された Ag サンプルに対して、Nd:YAG レーザー (532 nm) を照射する。プラズマ発光を観測するために、光学系には3枚のレンズを使用する。

レンズによって集光された光をモノクロメータ (日本分光, Model: CT-25) で分光し、光電子増倍管で検出、フォトンカウントを行う。測定では、オシロスコープを使用し、レーザーの発振タイミングに同期した PMT のシグナルを直接観測した。アブレーションによるプラズマ発光は非常に強力な発光であるため、Ag サンプルと光学系の観測領域に高低差を設けている。

本実験では、区間 325 nm \sim 344 nm (1 nm 間隔) でモノクロメータ (スリット幅: 0.2 mm) の波長を掃引することで、発光強度の変化を観測した。この時に得られた結果を図6に示す。

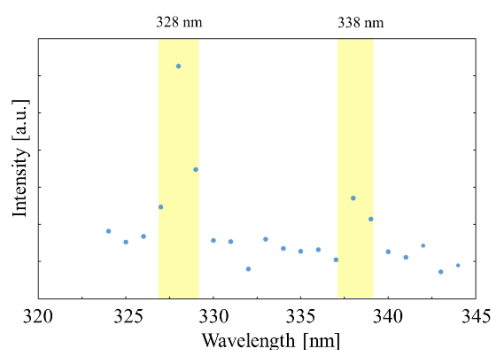


図6 Ag のプラズマ発光の観測結果

図6より、モノクロメータの波長が 338 nm と 328 nm の時に発光が強くなっている。よって Ag 原子の D1 及び D2 線の時にプラズマ発光が起きていることが確認できた。この結果から、Nd:YAG レーザー (532 nm) によって Ag サンプルをレーザーアブレーションし、超流動ヘリウム液面の上方で、原子、分子、イオン、電子、クラスター等を生成することに成功したといえる。

4.2 解離によるプラズマ発光観測

4.1 節においてヘリウム液面上方でのプラズマ発光が確認された。次に解離用レーザーを超流動ヘリウム内に照射して、超流動ヘリウム中内のクラスターが原子に解離されることを確かめる必要がある。そこで、超流動ヘリウム中でプラズマ発光の観測を行う。図7に実験セットアップを示す。

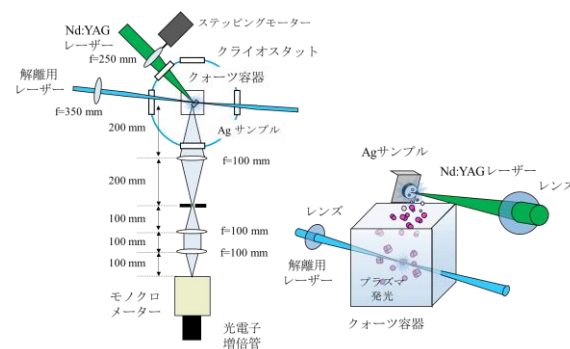


図7 解離によるプラズマ発光観測実験概略図

解離時のプラズマ発光の観測を行うために、モノクロメーター（スリット幅: 0.2 mm）の波長を Ag 原子の D1 線に相当する 338.3 nm に設定し、解離用レーザーである Nd:YAG レーザー（355 nm）は照射したままの状態、アブレーションレーザーを照射した時と、照射していない時の PMT シグナルの比較を行った。この時の結果を図 8 に示す。

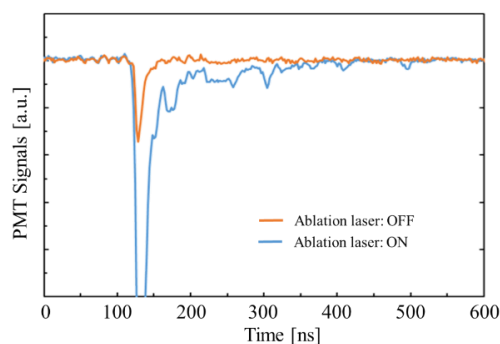


図 8 アブレーションレーザー照射の有無による PMT シグナルの比較

図 8 より、アブレーションレーザーを照射していない場合は、超流動ヘリウム中に Ag クラスターが存在しないため、レーザー由来の散乱光のみが観測されている。一方で、照射している場合には、レーザー由来の散乱光以外に、プラズマ発光によるシグナルを確認することができる。よって、Ag クラスターを Ag 原子へ解離することに成功したと考えられる。

以上、4.1 節、4.2 節の結果から、レーザーアブレーションによるプラズマ発光を観測するという方法において、超流動ヘリウム中への Ag 原子供給に成功したことが確かめられた。

4.3 $^{107,109}\text{Ag}$ 原子の偏極生成

前節までの実験で、2 本のレーザーを使用することで、超流動ヘリウム中に Ag 原子を供給することに成功した。ここでは、供給された Ag 原子に対して分光実験を行う。Ag 原子の二重共鳴分光を行うためには、まず、円偏光のポンピングレーザーを照射し、光ポンピング法を利用した偏極生成を行う必要である。また、超流動ヘリウム中に Ag 原子が存在しなければ、偏極生成は不可能であるため、偏極の確認によって、Ag 原子の供給に成功したことを再確認することも可能となる。

本実験では、Diode Pumped Solid State (DPSS) パルスレーザー（メガオプト, Model: HR-R3-OP20k、波長: 671 nm）を光源とし、非線形結晶である BiBO (BiB_3O_6) 結晶 (Castech, 外形: $3.0 \times 3.0 \times 10 \text{ mm}^3$) を使用し、第 2 高調波生成 (Second Harmonic Generation, SHG) を行うことで 335.5 nm を発生させる。ポンピングレーザーの概略図を図 9 に示す。

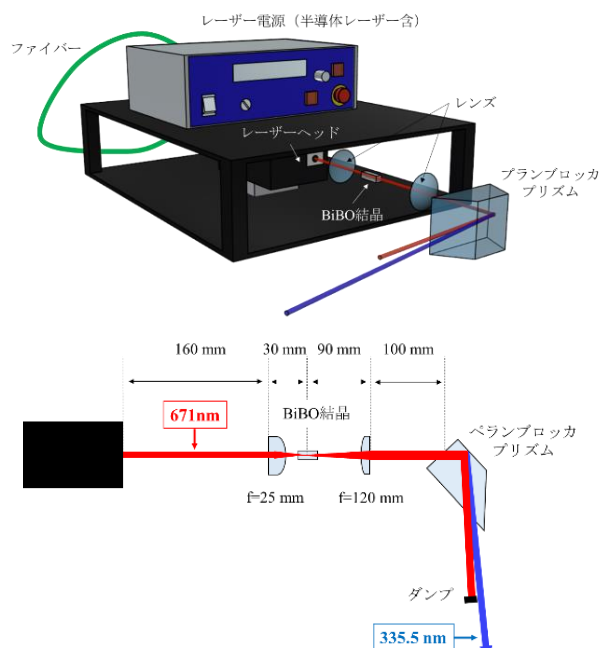


図 9 ポンピングレーザー概略図

ポンピングレーザーの照射によって偏極が生成されると、それに伴って LIF 強度が減少する。ここで、意図的に偏極を崩す操作を行い、LIF 強度が変化する様子が観測されれば、Ag 原子の偏極生成に成功している、と判断することができる。今回は円偏光レーザーを照射した状態で外部磁場を掃引することで偏極を崩すという方法を用いた。図 10 に実験セットアップを示す。

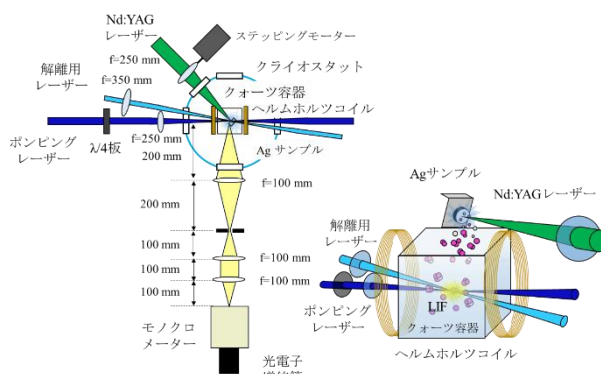


図 10 Ag 原子の偏極生成実験概略図

外部磁場の掃引には、クライオスタット内に設置したヘルムホルツコイルを使用する。このヘルムホルツコイルに直流安定化電源を用いて電流を流すことで磁場を発生させる。電流の制御にはファンクションジェネレーターを使用した。本実験では、コイル電流 0.0–1.8 A の範囲で掃引して測定を行った。この測定によって得られた結果を図 11 に示す。

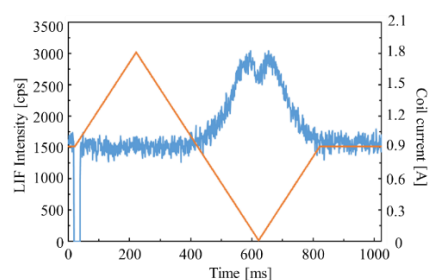


図 11 では、コイル電流値が 0 A、つまり磁場強度がゼロに近づくにつれて、偏極状態が崩れるため LIF 強度が増大している。ここから、磁場が印加された状態では偏極の生成に成功しているといえる。また、磁場がゼロになる時と、偏極時の光子数を用いて偏極度を見積もると、偏極度は 48 % となった。

本実験では、超流動ヘリウム中の Ag 原子に対して光ポンピング法を使用することで偏極生成に成功し、この偏極度が 48 % であるという結果が得られた。また、偏極を観測したことで、改めて超流動ヘリウム中への Ag 原子供給に成功したことを確認することができた。

4.4 $^{107,109}\text{Ag}$ 原子のレーザー・ラジオ波二重共鳴

4.3 節の結果より、光ポンピングによる Ag 原子の偏極生成が確認された。ここでは、レーザー・ラジオ波二重共鳴法を適用し、ラジオ波共鳴スペクトルの観測を行った。偏極生成実験と同様に、超流動ヘリウム中の Ag 原子に対して円偏光のポンピングレーザーを照射することで、偏極状態を生成、その後、ラジオ波を照射する。この周波数がゼーマン準位間隔に一致すると共鳴が起こり、再びポンピングレーザーを吸収し、LIF が放出される。図 12 に実験セットアップを示す。

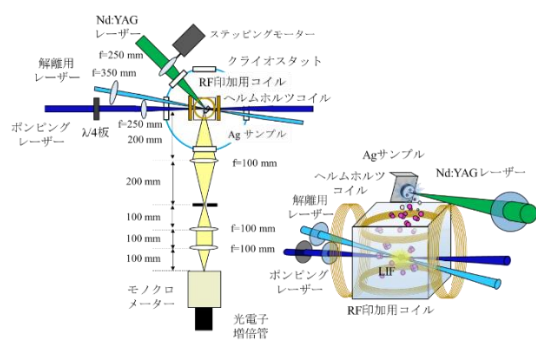


図 12 レーザー・ラジオ波二重共鳴実験の概略図

本実験では、ラジオ波周波数を一定に保った状態でコイルに印加する磁場を掃引する方法と、印加する磁場を固定し、ラジオ波の周波数を掃引する方法の 2 通りで測定を行った。この測定によって得られた結果をそれぞれ図 13、14 に示す。

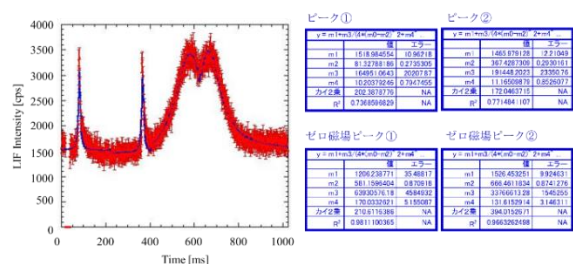


図 13 固定周波数ラジオ波を印加し、外部磁場を掃引して得られたラジオ波共鳴スペクトル

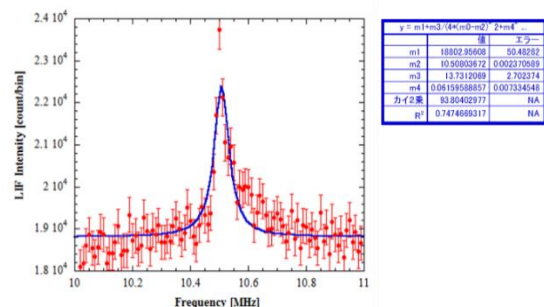


図 14 印加磁場を固定し、ラジオ波周波数を掃引して得られたラジオ波共鳴スペクトル

図 13、14 から、2 通りの方法でレーザー・ラジオ波二重共鳴スペクトルを取得することに成功した。

ゼーマン準位の共鳴周波数を取得することで、(4.1)式を用いて、印加磁場（測定環境の磁場）をより正確に決定することが可能となる。

$$\Delta E_{zeeman}/h = g_F \times \mu_B/h \times B \times m_F \quad (4.1)$$

ここで、 $\Delta E_{zeeman}/h$ はゼーマン準位共鳴周波数、 g_F は原子の g 因子、 μ_B/h はボーア磁子、 m_F は磁気量子数である。印加磁場（測定環境の磁場）をより正確に決定することは、次節におけるレーザー・マイクロ波二重共鳴実験の結果から、超微細構造間隔を決定する上で重要となる。

4.4 $^{107,109}\text{Ag}$ 原子のレーザー・マイクロ波二重共鳴

4.3 節の結果より、レーザー・ラジオ波二重共鳴スペクトルの取得に成功した。これによって、印加磁場（測定環境の磁場）を決定することが可能となった。ここでは、レーザー・マイクロ波二重共鳴法を適用し、マイクロ波共鳴スペクトルの観測を行った。

レーザー・ラジオ波二重共鳴実験と同様に、超流動ヘリウム中の Ag 原子に対して円偏光のポンピングレーザーを照射することで、偏極状態を生成、その後、マイクロ波を照射する。この周波数が超流動ヘリウム中 Ag 原子の超微細構造間隔に一致すると共鳴が起こり、再びポンピングレーザーを吸収し、LIF が放出される。図 15 に実験セットアップを示す。



Figure 1 displays two plots of LDF Intensity [cps] versus Time [ms] for two cases, ① and ②. Both plots show a sharp increase in intensity around 600ms, reaching a plateau around 5000 cps. The x-axis ranges from 0 to 1000 ms, and the y-axis ranges from 0 to 6000 cps. The data points are red circles, and the fitted curve is a blue line. The legend indicates $y = m1 \cdot \ln(x) + 4 \cdot (m2 - m1) \cdot 2 \cdot \ln(x) - 2 \cdot m2$.

ピーク①

パラメータ	値	単位
m1	2014.09200	1/42977
m2	82.0372705	0.4350017
σ	136.30226	2002.83
χ ² /dof	11.08630	12.1840
カイ2値	176.801805	NA
p値	0.5999892	NA

ピーク②

パラメータ	値	単位
m1	1925.65331	13.45132
m2	360.513276	0.4948462
σ	183.904944	3385.15
χ ² /dof	12.2603025	1453420
カイ2値	186.091839	NA
p値	0.595004464	NA

ゼロ磁場ピーク①

パラメータ	値	単位
m1	1525.290374	41.65037
m2	581.2548774	0.081477
σ	6170.11195	364362
χ ² /dof	125.3450509	33373.08
カイ2値	189.7051895	NA
p値	0.60526771	NA

ゼロ磁場ピーク②

パラメータ	値	単位
m1	1827.477181	14.18072
m2	652.0897777	0.7396652
σ	5476.002247	2166567
χ ² /dof	20.3427782	2.54912
カイ2値	405.159517	NA
p値	0.072574985	NA

図 16 ^{109}Ag のマイクロ波共鳴スペクトル (σ^+ 円偏光)

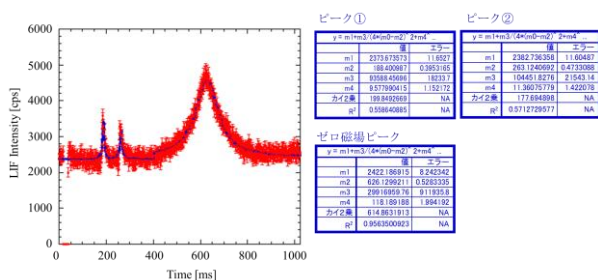


図 17 ^{109}Ag のマイクロ波スペクトル (σ^- 円偏光)

次に、印加磁場を固定し、マイクロ波周波数を掃引する方法を用いた測定を行う。コイルに印加する電流値を変化させ、 σ^{\pm} 円偏光を用いて各電流値における共鳴周波数を測定する。この測定をレーザー・ラジオ波二重共鳴と交互に行うことで、各測定時の磁場の値を決定した。その後、共鳴周波数対印加磁場の強度関係を求め、Breit-Rabi の公式 (4.2) 式に従って、磁場を外装することで、磁場強度 0 の超微細構造間隔の導出を行う。

$$E\left(1 \pm \frac{1}{2}, m_F\right) = -\frac{\Delta E_{hf s}}{2(2I+1)} - g_J \mu_B B m_F \pm \frac{\Delta E_{hf s}}{2} \sqrt{1 + \frac{4m_F}{2I+1} \times \frac{g_I - g_J}{\Delta E_{hf s}} + \left(\frac{g_I - g_J}{\Delta E_{hf s}}\right)^2} \quad (4.2)$$

5. まとめと今後の展望

我々は加速器で生成された低収量な原子核の核構造研究を目的に、OROCHIの開発を行っている。これまでに、安定同位体である $^{85,87}\text{Rb}$ 、 ^{133}Cs 、 ^{197}Au をアブレーション法で超流動ヘリウム中に導入し、OROCHIの適用に成功してきた。また、加速器施設で生成される Rb の不安定同位体への適用も成功している。しかし、 ^{197}Au を除き、アルカリ原子以外の原子の超微細構造間隔の測定は成功していない。OROCHIを適用可能な原子種の増大に向けて、一電子系原子であり、安定同位体を2つ持つ $^{107,109}\text{Ag}$ の超微細構造間隔の測定、ひいては超微細構造異常の導出を目指し、超流動ヘリウム中へ Ag 原子を供給し、レーザー・ラジオ波/マイクロ波二重共鳴法を用いた超微細構造間隔測定を行った。

$^{107,109}\text{Ag}$ の超微細構造間隔の測定に向けて、まずはレーザーアブレーション・解離によるプラズマ発光の観測を行い、超流動ヘリウム中へ Ag 原子を供給することに成功した。次に、ポンピングレーザーを照射し、外部磁場を掃引することで、偏極の生成を行った。これにより、偏極状態を生成し、48 % の偏極度を得ることに成功した。次に、レーザー・ラジオ波/マイクロ波二重共鳴法を適用し、世界で初めてマイクロ波共鳴ピークを得ることに成功し、超微細構造間隔、超微細構造異常の導出を行った。

本研究では、安定同位体の $^{107,109}\text{Ag}$ 原子に対して、レーザー・ラジオ波/マイクロ波二重共鳴法を適用し、超微細構造間隔の測定に成功した。これによって、OROCHI を適用可能な原子種が増大し、加速器実験における Ag の不安定同位体への適用に向けて大きな足掛かりになったと考えられる。今後は、遠不安定核に特異な構造を持つことが予言される Ag の不安定核に対して OROCHI を適用し、未知の原子核構造を明らかにすることが目標である。

- [1] Y. Takahashi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **71**, 1035 (1993).
- [2] T. Furukawa, Doctoral thesis, Osaka Univ. (2007).
- [3] T. Furukawa *et al.*, Physica E, **43**, 843 (2011).
- [4] T. Fujita, Master Thesis, Osaka Univ. (2014).
- [5] K. Imamura *et al.*, Hyperfine Interact **230**, 73 (2015).
- [6] X. F. Yang *et al.*, Phys. Rev. A, **90**, 052516 (2014).
- [7] W. Happer, Rev. Mod. Phys. **44**, 169 (1953).